

## 論文の内容の要旨

論文題目 屋外で使用される構造用集成材の接着性能

氏名 宮崎淳子

近年、構造用集成材を外構用部材として用いる事例が増加している。外部にさらされた集成材を劣化させる主な因子は腐朽と水であることから、屋外で集成材を使用する場合には高い耐朽性と耐水性を付与することが不可欠である。そのためには、ラミナを防腐処理した後に耐水性の高い接着剤で集成接着するとよいが、このような集成材を実用に供するには接着性能を検討する必要がある。外構用集成材の接着性能に関するこれまでの報告は、ラミナを接着してその接着強度や耐水性能を調べたものが多く、防腐処理によるラミナの性状変化や水の存在下における接着剤の物性のような接着に関与する因子と接着性能との関連から接着性能を検討した報告はほとんどない。そこで、本研究は、屋外で使用される構造用集成材の接着性能を明らかにすることを目的とし、防腐処理されたラミナの表面における物理的・化学的性質が接着性能に及ぼす影響（第2章）、接着剤の耐水接着性能に関わる性質である吸湿性および水による力学特性への影響（第3章）を検討した。

第1章では、集成材を構造用部材として利用することの利点を述べ、建築部材としての利用実績について外構用途を中心に取りまとめた。このような背景から、構造用集成材を屋外で利用する際に求められる性能と問題点を明らかにし、接着性能の視点から検討すべき事柄を本研究の目的として述べた。

第2章では、防腐処理がラミナの接着性能に及ぼす影響を検討した。防腐薬剤は市販の AAC（アルキルアンモニウム化合物系）、ACQ（銅・アルキルアンモニウム化合物系）、CuAz（銅・ホウ酸・アゾール）を、また接着剤は一般に構造用集成材に使用されている RF（レゾルシノール樹脂接着剤）、PRF（フェノールレゾルシノール共縮合樹脂接着剤）、API（水性高分子イソ

シアネート系接着剤)を用いた。結果は以下の通りである。

インサイジング処理および防腐薬剤を加圧注入したラミナの接着性能を構造用集成材の日本農林規格に従って評価した。インサイジングによってラミナのせん断強度は低下した。接着面に占めるインサイジング傷痕の面積が大きく、ラミナ表面の強度が低下する場合にせん断強度は低下したが、接着面に占めるインサイジング傷痕の面積を減らすことによって接着性能は向上し、無処理材と同等の接着強度にまで回復することが示された。他方、防腐処理によってラミナの接着性能は低下することが示された。接着面を切削することによって接着性能は回復したことから、防腐処理によるラミナの表面性状の変化が接着性能を低下させる原因であると考えられた。そこで、防腐処理によるぬれ性や表面粗さの変化、およびラミナに付着した薬剤成分が接着剤の硬化に及ぼす影響を調べ、ラミナの接着性能との関連を検討した。

まず、防腐処理による表面のぬれ性と粗さの変化が接着性能に及ぼす影響を検討した。AAC、ACQ、CuAz で処理されたラミナのぬれ性は無処理材よりも良好であったことから、防腐処理によるぬれ性の変化は接着性能を低下させる原因ではないことが示された。また、防腐処理されたラミナの表面には落ち込みによる凹凸が観察され、接着不良の原因になると考えられた。カラマツでは防腐処理ラミナの表面を切削せずに接着するとせん断強度が低下し、はく離率が增大したが、表面を切削して凹凸を軽減すると接着性能は向上し、凹凸を除けば無処理材と同程度の接着性能が得られた。トドマツでは防腐処理後の材面に落ち込みが観察されたにもかかわらず、表面切削を行わなくても無処理材と同程度の接着性能を得ることができた。このように樹種によって表面粗さによる接着性能への影響が異なる理由は次のように考えられた。トドマツは早晚材の比重差が小さく、落ち込みによる凹凸は接着操作における圧縮時に軽減されるため、接着性能が低下しなかったが、カラマツでは晩材が堅く早晚材の比重差が大きいため、落ち込みが圧縮によって軽減されず、接着不良の原因になったと推察された。

次に AAC、ACQ、CuAz が RF、PRF、API の硬化に及ぼす影響を検討した。AAC、ACQ、CuAz を添加して硬化させた各接着剤の硬化物について、化学構造、分子構造をそれぞれ分光学的手法、力学測定で解析した。以下、接着剤ごとに結果を述べる。

RF の硬化は AAC の添加による影響を受けなかったが、ACQ、CuAz による影響を受けることが示唆された。これは、ACQ、CuAz に共通する成分である銅が関与していると考え、銅を添加して硬化させた RF の架橋構造を IR 分析と TBA 法による動的粘弾性測定で調べた。IR 分析の結果から、銅の添加によって架橋結合であるメチレン基が減少することが示された。メチレン基の減少に伴いレゾルシノール核にある 3 つの反応点のうち、1 つあるいは 2 つが置換された構造が増加することが示された。動的粘弾性測定の結果から、銅の添加によって RF の分子の易動性が增大することが示された。IR 分析と粘弾性測定の結果から、RF は、銅によって架橋結合の生成とレゾルシノール核の反応活性点における結合が阻害され、架橋構造の形成が阻害されると考えられた。

PRF に対して AAC を添加した場合、架橋結合であるメチレン基とジメチレンエーテル基が増加し、これに対応して分子運動の拘束が示されたことから、AAC によって PRF の硬化反応は促

進されると考えられた。ACQ、CuAz については、添加量が少量の場合に架橋結合の増大と分子の運動性の低下が示され、硬化反応の促進が示された。多量に添加した場合、粘弾性測定の結果から分子の易動性は増大することが示唆された。IR 分析によって ACQ、CuAz は PRF の架橋結合の生成を阻害しないことが示されたことを合わせて考察すると、多量の防腐薬剤によって可塑化効果が発現したものと推察された。

API に AAC を添加した場合、API の架橋の生成が阻害されることが示唆された。他方、ACQ、CuAz を添加することでウレタン結合が減少し、PVA と SBR の相互作用が低下することが示された。これは PVA の水酸基が ACQ、CuAz に含まれる銅と錯体を形成し、ウレタン結合の生成に関与する水酸基が減少したためと推測された。これらの結果、AAC、ACQ、CuAz は API の架橋構造の形成を阻害することが明らかとなった。

これまで述べてきた防腐薬剤による RF、PRF、API の硬化への影響が防腐処理ラミナの接着性能を低下させるかどうかを検討するために、防腐処理されたラミナの接着性能を調べた。なお、表面粗さによる接着性能の低下を避けるために、防腐処理されたラミナ表面はプレーナーで切削した。その結果、RF で接着した場合、いずれの防腐薬剤で処理されたラミナについても接着性能は低下しなかった。同様に PRF、API で接着した場合においても、防腐処理ラミナの接着性能は低下しなかった。防腐処理ラミナに接着剤を塗布したときに接着剤中に溶け込む薬剤成分の量が微量であったために、接着剤の硬化がほとんど阻害されなかったと推察された。

以上の結果から、AAC、ACQ、CuAz で処理されたラミナの接着性能を低下させる原因は、防腐処理で生じる落ち込みによる表面粗さの増大であることがわかった。接着面をプレーナーで平滑に整えることで防腐処理ラミナの接着性能は無処理材と同程度にまで改善できるが、防腐処理後に表面を切削することは防腐薬剤が多量に含浸されている部分を除去することでもあるため、表面の落ち込みを抑制するような防腐処理を施すことが望ましい。トドマツのような比重が低く、早晚材の比重差が小さい樹種を選ぶことは、落ち込みの影響を軽減できる有効な方法のひとつであった。いずれにしても、防腐処理による表面粗さの増大を除くことができれば、防腐処理ラミナの集成接着に問題はないと考えられた。

第 3 章では、RF と API の耐水接着性能の違いを明らかにするために、RF と API の架橋構造の違いに基づき、それぞれの吸湿性および吸湿による力学特性の変化を比較した。RF と API はいずれも架橋の程度が増大すると吸湿性は低下した。RF は、硬化を進めると架橋点間が短く緻密な網目構造を形成されるために膨潤が抑制されて、吸湿性が低下すると考えられた。API は、硬化剤を十分に加えて硬化させても架橋構造は比較的緩く、膨潤は強く抑制されないために、RF のように架橋の増大が吸湿性を低下させる原因であるとは考えにくく、硬化反応によって水酸基が減少するために吸湿性が低下すると考えられた。RF と API におけるこうした違いは、水の存在下における力学特性の違いを示唆するものであった。十分に硬化を進めた RF は比較的多量の水を吸着するが、水によってセグメント間の相互作用が低下しても、緻密な網目構造によって分子鎖は拘束されているために収着水は RF の力学的性質にはほとんど影響しない。他方、API は十分に硬化を進めても架橋点間が比較的長く、未反応の水酸基が残存して水素結合を形

成しているために収着水によって水素結合が切断されると分子鎖の運動性が増大すると考えられ、このことがわずかな含水率の増大によって弾性を低下させ相対的に粘性を増大させる原因であると考えられた。こうしたことから、RF と API の耐水性能は全く異なることがわかる。とりわけ API の場合、常態と高湿度下および湿潤下とではその力学的性質が大きく変化することを考慮して使用する必要がある。